

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

DIALOG(R)File 345:Inpadoc/Fam.& Legal Stat

(c) 2004 EPO. All rts. reserv.

18255938

Basic Patent (No,Kind,Date): JP 2002319488 A2 20021031 <No. of Patents: 001>

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT (English)

Patent Assignee: HONDA MOTOR CO LTD

Author (Inventor): TSUGE HODAKA; KOMATSUZAKI AKIHIRO

IPC: \*H05B-033/10; C09K-011/06; H05B-033/14; H05B-033/22

CA Abstract No: 137(23)343707F

Derwent WPI Acc No: C 03-260374

Language of Document: Japanese

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applic No	Kind	Date
-----------	------	------	-----------	------	------

JP 2002319488	A2	20021031	JP 2001123343	A	20010420 (BASIC)
---------------	----	----------	---------------	---	------------------

Priority Data (No,Kind,Date):

JP 2001123343	A	20010420
---------------	---	----------

DIALOG(R)File 347:JAPIO

(c) 2004 JPO & JAPIO. All rts. reserv.

07450973 \*\*Image available\*\*

ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

PUB. NO.: 2002-319488 [JP 2002319488 A]

PUBLISHED: October 31, 2002 (20021031)

INVENTOR(s): TSUGE HODAKA

KOMATSUZAKI AKIHIRO

APPLICANT(s): HONDA MOTOR CO LTD

APPL. NO.: 2001-123343 [JP 2001123343]

FILED: April 20, 2001 (20010420)

INTL CLASS: H05B-033/10; C09K-011/06; H05B-033/14; H05B-033/22

#### ABSTRACT

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an organic electroluminescent element having a multilayer structure.

**SOLUTION:** An organic matter constituting a hole block layer 50 is to be soluble to solvent having solubility parameter outside the dissolving range against an organic matter constituting a light-emitting layer 40 to be laminated on a positive electrode 10 side of the hole block layer 50.

**COPYRIGHT:** (C)2002,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-319488

(P 2 0 0 2 - 3 1 9 4 8 8 A)

(43) 公開日 平成14年10月31日 (2002.10.31)

(51) Int. Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	キーワード (参考)
H05B 33/10		H05B 33/10	3K007
C09K 11/06	660	C09K 11/06	660
H05B 33/14		H05B 33/14	B
33/22		33/22	B
			D
審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全16頁)			

(21) 出願番号 特願2001-123343 (P 2001-123343)

(22) 出願日 平成13年4月20日 (2001.4.20)

(71) 出願人 000005326

本田技研工業株式会社

東京都港区南青山二丁目1番1号

(72) 発明者 柘植 穂高

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン

ダエンジニアリング株式会社内

(72) 発明者 小松崎 明広

埼玉県狭山市新狭山1丁目10番地1 ホン

ダエンジニアリング株式会社内

(74) 代理人 100060025

弁理士 北村 欣一 (外1名)

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB18 CA01

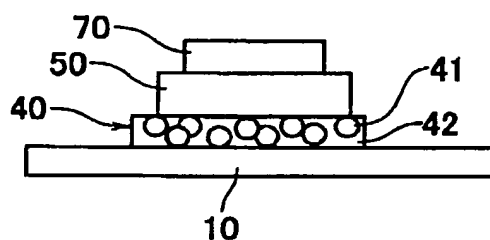
CB01 DA01 DB03 EB00 FA01

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【課題】 簡易な多層積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供する。

【解決手段】 正孔ブロック層50を構成する有機物を、正孔ブロック層50の陽極層10側に積層する発光層40を構成する有機物に対して溶解範囲外の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶とする。



(2)

特開2002-319488

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】陽極層及び陰極層の両電極層と、ホスト剤と燐光を放射するドーブ剤とを有する発光層と、前記両電極層の間で該発光層に積層する有機層とを具備し、前記電極層の一方が基板上に形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機層を構成する有機物が、該有機層の前記基板側に積層する前記発光層を構成する有機物に対して溶解範囲外の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であることを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】前記有機層を構成する有機物は、電子注入性物質、電子輸送性物質、正孔ブロック性物質のうち一種以上から成ることを特徴とする請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

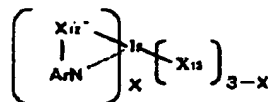
【請求項3】前記発光層を構成する有機物は、室温において $8.9 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 未満の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $7.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $8.9 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 未満の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】前記発光層を構成する有機物は、室温において $8.3 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $7.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $8.3 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】前記発光層を構成する有機物は、室温において $11.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $13.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $11.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $13.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であることを特徴とする請求項1または2に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項6】前記ドーブ剤の分子構造は、

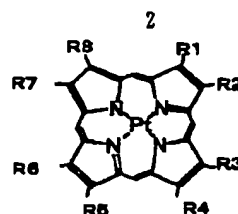
【化1】



(化学式【化1】中、Arはアリール基、 $\text{X}_{11}$ 及び $\text{X}_{12}$ はそれぞれ独立に任意の置換基を示し、Arと $\text{X}_{11}$ とにおいて芳香環が縮合しても良く、nは1以上3以下の整数である。)として示されることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】前記ドーブ剤の分子構造は、

【化2】



(化学式【化2】中、R1～R8は、それぞれ独立に水素または任意の置換基を示し、あるいは／および隣接する $\text{R}_n$  (nは1以上8以下のいずれかから成る整数)において芳香環が縮合しても良い。)として示されることを特徴とする請求項1乃至5のいずれか1項に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、高輝度での発光が可能な有機エレクトロルミネッセンス素子に関する。

【0002】

【従来の技術】従来、米国特許第6097147号により、燐光を放射する物質を含有する発光層を備えた多層積層構造で形成され、発光効率を向上させた有機エレクトロルミネッセンス素子が知られている。

【0003】このものにおいて、多層から成る薄膜の積層形成に際して発光性物質の蒸着工程を用いる、いわゆる乾式法を採用しているため、製造工程が複雑になり生産効率が悪い。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明では上記問題点に鑑み、簡易な多層積層構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子を提供することを課題としている。

【0005】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するため、本発明は、陽極層及び陰極層の両電極層と、ホスト剤と燐光を放射するドーブ剤とを有する発光層と、前記両電極層の間で該発光層に積層する有機層とを具備し、前記電極層の一方が基板上に形成される有機エレクトロルミネッセンス素子において、前記有機層を構成する有機物が、該有機層の前記基板側に積層する前記発光層を構成する有機物に対して溶解範囲外の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶とした。

【0006】ここで、モル蒸発熱 $\Delta H$ 、モル体積Vの液体の絶対温度Tにおける溶解度パラメータSPは、 $SP = \{(\Delta H - RT) / V\}^{1/3}$

で定義される。ただし、上記式中、SPは溶解度パラメータ(単位： $\text{(cal/cm}^3)^{1/3}$ )であり、 $\Delta H$ はモル蒸発熱(単位： $\text{cal/mol}$ )であり、Rは気体定数(単位： $\text{cal/(mol} \cdot \text{K)}$ )であり、Tは絶対温度(単位：K)であり、Vはモル体積(単位： $\text{cm}^3/\text{mol}$ )である。

【0007】本発明では、有機層を構成する有機物を、

発光層を構成する有機物に対して溶解範囲外の溶解度パ

(3)

特開2002-319488

3

4

ラメータを有する溶媒に溶解して、有機エレクトロルミネッセンス素子を多層積層構造として形成する。この際、発光層を構成する有機物は、有機層を構成する有機物の溶解に用いた溶媒に対して溶解度が僅小であるので、発光層と有機層とは、互いに隣接して積層した場合、各薄膜層を構成する有機物が溶解・混合することなく薄膜層を形成できる。即ち、発光層や有機層の各薄膜層を構成する有機物を溶解する溶媒をそれぞれ用いた湿式法により簡便な薄膜形成が可能である。

【0008】この場合、前記有機層を構成する有機物を、電子注入性物質、電子輸送性物質、正孔ブロック性物質のうち一種以上から構成することが望ましい。

【0009】そして、この場合、前記発光層を構成する有機物は、室温において $8.9 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 未満の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $7.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $8.9 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 未満の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であるように構成することが望ましい。

【0010】また、前記発光層を構成する有機物は、室温において $8.3 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $7.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $8.3 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であるように構成することも可能である。

【0011】また、前記発光層を構成する有機物は、室温において $11.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $13.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に不溶であり、前記有機層を構成する有機物は、室温において $11.5 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上 $13.0 \text{ (cal/cm}^3)^{1/3}$ 以下の溶解度パラメータを有する溶媒に可溶であるように構成することも可能である。

【0012】これらの場合、前記ドーパ剤は、化学式【化1】又は【化2】で表される化合物を用いるのが好適である。

【0013】

【発明の実施の形態】図1は、発光効率の向上を目的として多層に積層された素子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子の基本構造を示す。有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、陽極層10と陰極層70との両電極層の間に、図外の基板上に形成された陽極層10に、正孔輸送層20、電子ブロック層30、発光層40、正孔ブロック層50及び電子輸送層60の各薄膜層が順次積層されて成る多層積層構造であり、発光層40は、発光層ドーパ剤41と発光層ホスト剤42とを有している。

【0014】図1乃至図4で示される各素子構造において、陽極層10は、例えばガラス基板のような透明絶縁性支持体に形成された透明な導電性物質が用いられ、そ

の材料としては、酸化錫、酸化インジウム、酸化錫インジウム(ITO)などの導電性酸化物、あるいは、金、銀、クロムなどの金属、よう化銅、硫化銅などの無機導電性物質、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性ポリマーなどを用いることができる。

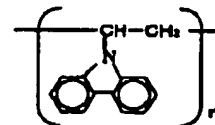
【0015】また、陰極層70が透明な材料で形成されている場合には、陽極層10は不透明な材料で形成されても良い。

【0016】また、図1乃至図4で示される各素子構造において、陰極層70には、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、珪素、アルミニウム、銅、銀、金などの単体または合金が使用できる。さらに、これらを積層して使用することもできる。また、テトラヒドロアルミン酸塩により湿式で形成することもできる。この場合、陰極層70に用いられるテトラヒドロアルミン酸塩としては、特に、水素化アルミニウムリチウム、水素化アルミニウムカリウム、水素化アルミニウムマグネシウム、水素化アルミニウムカルシウムを挙げることができる。この中で、水素化アルミニウムリチウムが、特に電子輸送層への電子注入性に優れている。

【0017】また、正孔輸送層20は、陽極から注入される正孔を輸送するための層であり、正孔輸送性有機物を含む有機層である。正孔輸送層性有機物の例として、

【0018】

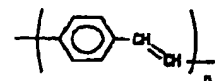
【化3】



【0019】【化3】に示すポリ(N-ビニルカルバゾール)(以下PVKともいう。)

【0020】

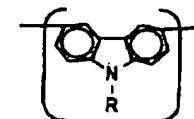
【化4】



【0021】【化4】に示すポリ(パラフェニレンビニレン)、

【0022】

【化5】



【0023】(化学式【化5】中、RはC、H、O、Nで構成する置換基である)【化5】を繰り返し単位として有するポリカルバゾール化合物などの高分子からなることが好ましい。あるいは、

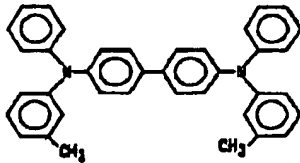
(4)

特開2002-319488

5

【0024】

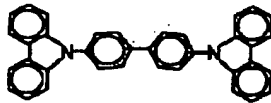
【化6】



【0025】【化6】に示すN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(3-メチルフェニル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(以下TPDともいう。)

【0026】

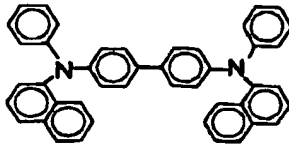
【化7】



【0027】【化7】に示すカルバゾールビフェニル(以下、CBPとも言う。)

【0028】

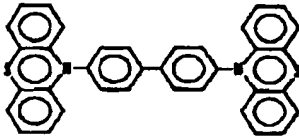
【化8】



【0029】【化8】に示すN, N'-ジフェニル-N, N'-ビス(1-ナフチル)-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン(以下、NPDとも言う。)

【0030】

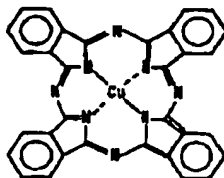
【化9】



【0031】【化9】に示す4, 4'-ビス(10-フェノチアジニル)ビフェニル、

【0032】

【化10】



【0033】【化10】に示す銅パーフタロシアニン等が挙げられる。

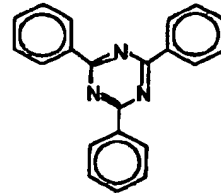
【0034】また、電子ブロック層30は、陰極層70

6

から発光層40へ注入された電子がそのまま陽極層10へ通過してしまうことを防ぐため電子をブロックするための層であり、電子ブロック性物質で構成される。電子ブロック性物質としては、例えば、【化3】、【化4】、【化6】乃至【化9】で示される化合物や、

【0035】

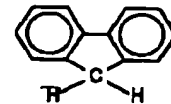
【化11】



【0036】【化11】に示す2, 4, 6-トリフェニル-1, 3, 5-トリアゾール、

【0037】

【化12】

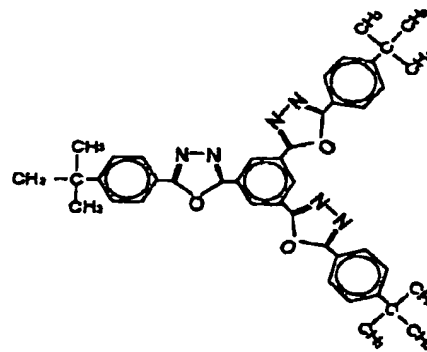


【0038】【化12】に示すフローレン、などを挙げることができる。

【0039】また、発光層40はドーパ剤41とホスト剤42とを有し、これらドーパ剤41とホスト剤42とを均一に分散させるため、バインダ高分子を添加することも可能である。ホスト剤42は、陽極層10及び陰極層70からそれぞれ注入された正孔と電子とが発光層40において再結合する際に賦活されて励起子として作用する物質であり、

【0040】

【化13】



【0041】【化13】に示す1, 3, 5-トリ(5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール)フェニル(以下OXD-1ともいう。)

【0042】

【化14】

20

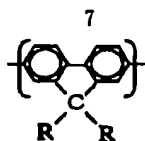
30

40

50

(5)

特開2002-319488



【0043】(化学式[化14]中、RはC、H、O、Nで構成する置換基を示す。)[化14]を繰り返し単位として有するポリフルオレン化合物、などが挙げられる。

【0044】一方、発光層40のドーパ剤41は、励起子たるホスト剤の励起エネルギーにより燐光を放射する物質であり、

【0045】

【化15】



【0046】[化15]に示すトリ(2フェニルピリジン)イリジウム錯体(以下Ir(ppp)、とも言う。)、

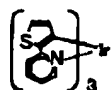
【0047】

【化16】



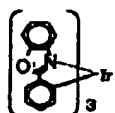
【0048】

【化17】



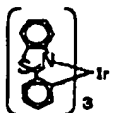
【0049】

【化18】



【0050】

【化19】



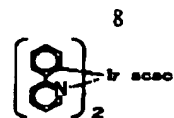
【0051】

【化20】



【0052】

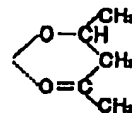
【化21】



【0053】(化学式[化21]中、acacは、

【0054】

【化22】

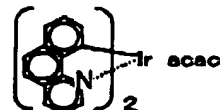


【0055】[化22]で示される官能基を示す。下記[化23]乃至[化27]に示す化学式において同じ。)

【0056】

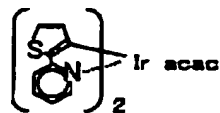
【化23】

(化23)



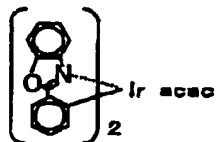
【0057】

【化24】



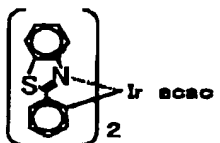
【0058】

【化25】



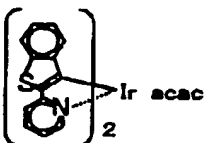
【0059】

【化26】



【0060】

【化27】



【0061】[化16]乃至[化21]、[化23]乃至[化27]で示されるイリジウム錯体化合物、

50

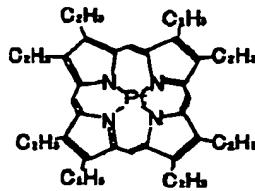


(6)

特開2002-319488

9

【0062】  
【化28】

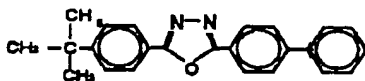


【0063】【化28】に示す2, 3, 7, 8, 12, 13, 17, 18-オクタエチル-21H, 23H-白金(II)ポルフィン(以下PtOEPとも言う。)などを挙げるができる。

【0064】また、発光層40に添加可能なバインダ高分子の例として、ポリスチレン、ポリビニルピフェニル、ポリビニルフェナントレン、ポリビニルアントラセン、ポリビニルペリレン、ポリ(エチレン-こ-ビニルアセテート)、ポリブタジエンのcisとtrans、ポリ(2-ビニルナフタレン)、ポリビニルピロリドン、ポリスチレン、ポリ(メチルメタクリレート)、ポリ(ビニルアセテート)、ポリ(2-ビニルピリジン-こ-オスチレン)、ポリアセナフチレン、ポリ(アクリロニトリル-こ-ブタジエン)、ポリ(ベンジルメタクリレート)、ポリ(ビニルトルエン)、ポリ(スチレン-こ-アクリロニトリル)、ポリ(4-ビニルピフェニル)、ポリエチレングリコールなどが挙げられる。

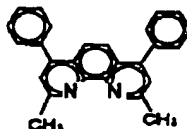
【0065】また、正孔ブロック層50は、陽極層10から発光層40へ注入された正孔がそのまま陰極層70へ通過してしまうことを防ぐため正孔をブロックするための層であり、正孔ブロック性物質で構成される。正孔ブロック性物質としては、例えば、

【0066】  
【化29】



【0067】【化29】に示す2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール、(以下PBDともいう。)、

【0068】  
【化30】



【0069】【化30】に示すバソキュプロイン(以下BCPともいう。)、【化13】に示すOXD-1、【化29】に示すPBD、

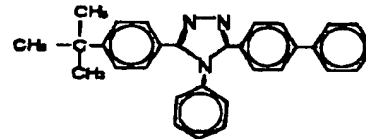
10

【0070】  
【化31】



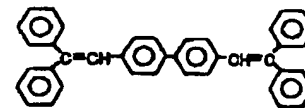
【0071】【化31】に示すトリス(8-ヒドロキシキノリナート)アルミニウム(以下Alq3ともいう。)、

【0072】  
【化32】



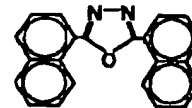
【0073】【化32】に示す3-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-1,2,4-トリアゾール(以下、TAZともいう。)、

【0074】  
【化33】



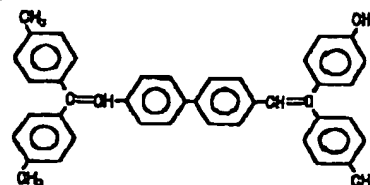
【0075】【化33】に示す4,4'-ビス(1,1-ジフェニルエチニル)ビフェニル(以下にDPVBともいう。)、

【0076】  
【化34】



【0077】【化34】に示す2,5-ビス(1-ナフチル)-1,3,4-オキサジアゾール(以下にBNDともいう。)

【0078】  
【化35】



【0079】【化35】に示される4,4'-ビス(1,1-ビス(4-メチルフェニル)エチニル)ビフェニル(以下DTVBiとも言う。)、

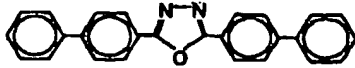
【0080】

(7)

特開2002-319488

11

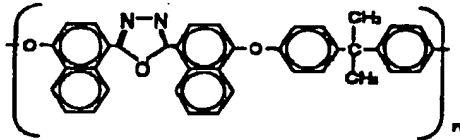
【化36】



【0081】【化36】に示される2, 5-ビス(4-ピフェニリル)-1, 3, 4-オキサジアゾール(以下BBDともいう。)、

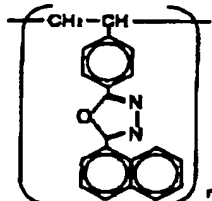
【0082】

【化37】



【0083】

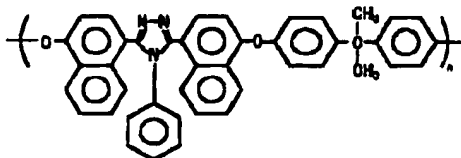
【化38】



【0084】【化37】、【化38】に示すようなオキサジアゾール系高分子化合物、

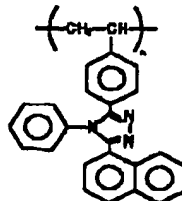
【0085】

【化39】



【0086】

【化40】



【0087】【化39】、【化40】で示すようなトリアゾール系高分子化合物、などを挙げることができる。

【0088】また、電子輸送層60は、陰極層70から注入される電子を輸送するための層であり、電子輸送剤を含む。電子輸送剤は、電子輸送性高分子で構成され、さらに電子輸送性低分子を含む構成が可能である。

【0089】ここで、電子輸送性低分子の例として、

【化29】に示すPBD、【化31】に示すAlq3、

【化32】に示すTAZ、【化33】に示すDPVB

1、【化34】に示すBND、【化35】に示すDTV

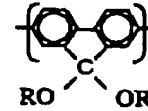
12

B1、【化36】に示すBBDなどを挙げることができる。

【0090】また、電子輸送性高分子の例として、【化37】、【化38】で示されるようなオキサジアゾール系高分子化合物、【化39】、【化40】で示されるようなトリアゾール系高分子化合物、

【0091】

【化41】



【0092】(化学式【化41】中、RはC、H、O、Nで構成する置換基を示す。)【化41】を繰り返し単位に有するポリフルオレン化合物、などが挙げられる。

【0093】発光効率のさらなる向上や構造の簡素化のため、図1に示す有機エレクトロルミネッセンス素子の基本構造に変更を加えたものとして、図2乃至図5に示す素子構造が可能である。

20 【0094】図2で示される有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第1の実施形態を示す。図1の正孔輸送層20と電子ブロック層30と電子輸送層60とが省略されているが、図2において、発光層40に正孔輸送効果と電子ブロック効果とを持たせ、正孔ブロック層50に電子輸送効果を持たせて、発光効率を維持させることができる。

【0095】図3で示される有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、図1で示す素子構造において、

30 電子ブロック層30と電子輸送層60とを省略したものである。

【0096】図4で示される有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造は、図1で示す素子構造から、電子ブロック層30と正孔ブロック層50とを省略したものである。

【0097】次に、図2を本発明の第1の実施形態として、有機エレクトロルミネッセンス素子の製造方法を説明する。

【0098】まず、図外の基板となる透明絶縁性支持

40 体、例えばガラス基板上に陽極層10を蒸着法またはスパッタ法にて形成する。

【0099】次に、発光層40を構成するドーパ剤41とホスト剤42とを溶媒に溶解または分散した第1の溶液を作成する。ここで、第1の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散することも可能である。そして、その第1の溶液を用いた湿式法によって、上記陽極層10上に発光層40を形成する。

【0100】さらに、正孔ブロック性物質を溶媒に溶解または分散した第2の溶液を作成する。ここで、第2の溶液に、さらにバインダ高分子を溶解または分散するこ

とも可能である。その第2の溶液を用いた湿式法によって、発光層40上に正孔ブロック層50を形成する。

【0101】また、第2の溶液に用いる溶媒の溶解度パラメータは、正孔ブロック層50の成膜温度において、発光層40に含まれる物質（ドープ剤41、ホスト剤42及びバインダ高分子など）に対して可溶範囲外を示す値を有する。このような溶媒を用いた、湿式法による正孔ブロック層50の形成において、下層の発光層40に含まれる有機物を溶解することがない。

【0102】例えば、発光層40に含まれるドープ剤41が【化12】に示すOXD-1であり、ホスト剤42が【化15】に示すIr(pppy)<sub>3</sub>であり、バインダ高分子としてポリ(4-ビニルピフェニル)を用いる時、これらの発光層を構成する有機物の可溶範囲を示す溶解度パラメータは、室温において8.7(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>以上11.1(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>以下である。したがって、第2の溶液に用いる溶媒として、この溶解度パラメータの範囲外にある溶媒を用いると、発光層40に含まれる有機物を溶解することなく正孔ブロック層50を形成する事が出来る。このような、溶媒の例としてn-ノナン（溶解度パラメータ7.64(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）、1-デセン（溶解度パラメータ7.85(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）、メチルシクロヘキサン（溶解度パラメータ8.13(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）、シクロヘキサン（溶解度パラメータ8.20(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）、1-クロロプロパン（溶解度パラメータ8.30(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）、アセトニトリル（溶解度パラメータ11.8(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）などが挙げられる。

【0103】この時、上記の第1及び第2の溶液に用いる溶媒は自然乾燥によって蒸発することにより、発光層40と正孔ブロック層50とが形成される。この場合、加熱、紫外線の照射による重合、硬化等の処理を行う必要がなく、従って、製造工程が簡単であり、生産効率を向上させることができる。

【0104】本発明で使用される湿式法には、たとえばキャスト法、ブレードコート法、浸漬塗工法、スピンコート法、スプレーコート法、ロール塗工法、インクジェット塗工法などの通常の塗工法が含まれる。

【0105】最後に、正孔ブロック層50上に、蒸着法などを用いて陰極層70を形成し、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子が得られる。

【0106】なお、溶解度パラメータSPは、モル蒸発熱ΔH、モル体積Vの液体の絶対温度Tにおいて、 $SP = \{(\Delta H - RT) / V\}^{1/3}$

で定義される。ただし、上記式中、SPは溶解度パラメータ（単位：(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>）であり、ΔHはモル蒸発熱（単位：cal/mol）であり、Rは気体定数（単位：cal/(mol・K)）であり、Tは絶対温度（単位：K）であり、Vはモル体積（単位：cm<sup>3</sup>）

/mol）である。

【0107】また、図3は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第2の実施形態であり、上記図2で示される素子構造の製造工程中、発光層40を形成する前に、陽極層10上にPVKなどの正孔輸送性物質を湿式法により成膜して正孔輸送層20を形成した後、図2と同様に発光層40と正孔ブロック層50と陰極層70を順次形成する製造工程を経て得られる。

【0108】また、図4は、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子の第3の実施形態であり、上記図2で示される素子構造の製造工程中、発光層40を形成する前に、陽極層10上にPVKなどの正孔輸送性物質を湿式法により成膜して正孔輸送層20を形成した後、図2と同様に発光層40を形成し、該発光層40上にポリフルオレン化合物などの電子輸送性高分子または、ポリカルバゾール化合物などの電子輸送性低分子を湿式法により成膜して電子輸送層60を形成した後、該電子輸送層60上に、上記図2と同様に陰極層70を形成する製造工程を経て得られる。

【0109】

【実施例】【実験1】所定の膜厚を有する薄膜を基板上に積層したテストピースを作成し、所定の溶解度パラメータを有する溶媒に対する溶解範囲を測定した。

【0110】有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する、正孔輸送層、電子ブロック層、発光層、正孔ブロック層、電子輸送層、電子注入層などの薄膜層の材料6mgを、可溶性溶媒1mlに溶解して、溶液を作成する。この溶液を用いて、酸素プラズマ処理を施した市販のITO基板（旭硝子社製：20Ω/□）上に、スピンコート法により膜厚が50nmとなるように、回転数及び時間を調整して、薄膜付の基板を作成し、テストピースとする。

【0111】

【表1】

溶媒名	溶解度 パラメータ
n-ペンタン	7.05
ヘキサン	7.30
ヘプタン	7.45
n-オクタン	7.54
n-ノナン	7.64
n-デカン	7.74
1-デセン	7.85
メチルシクロヘキサン	8.13
シクロヘキサン	8.20
1-クロロプロパン	8.30
テトラクロロメタン	8.60
エチルベンゼン	8.70
n-キシレン	8.80
トルエン	8.90
トリクロロメタン	9.10
ベンゼン	9.20
トリクロロエチレン	9.30
クロロベンゼン	9.60
1,2-ジクロロエタン	9.70
ブロモベンゼン	9.80
o-ジクロロベンゼン	10.00
α-ブromoナフタリン	10.60
ニトロエタン	11.10
アセトニトリル	11.80
ニトロメタン	12.70

【0112】[表1]に示す溶解度パラメータを有する溶媒を、これら溶解度パラメータ値の昇順に用意し、図5(a)及び図5(b)に示すように、それらの溶媒1で満たされたビーカー2にテストピース3をそれぞれ10秒間浸漬させ、その後、図5(c)に示すように、テストピース3を取り出して薄膜が溶解したか否かを目視で確認する。

【0113】薄膜が溶解する溶媒の溶解度パラメータのうち、最小値と最大値とをテストピースの溶解範囲と定義する。

【0114】[実施例1] ゲルパーエーションクロマトグラフィーにより測定したポリスチレン換算重量平均量(以下分子量という。)が1,100,000のPVKとして6mgとIr(ppy),として0.5mgとを1mlの1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0115】PBDとして2.5mgと[化21]で示すイリジウム錯体化合物として0.17mgとバインダ高分子としてポリスチレン(分子量10,000)2.5mgとをシクロヘキサン(溶解度パラメータ8.2( $\text{cal}/\text{cm}^3$ )<sup>1/2</sup>)1mlに溶解して、溶液2を作成し

た。

【0116】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上(市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1を回転数1000rpm、1秒間スピンコートする事により50nmの発光層を形成した。この発光層の溶解範囲は8.9~10.0( $\text{cal}/\text{cm}^3$ )<sup>1/2</sup>であった。

【0117】さらに、発光層上に溶液2を回転数1000rpm、1秒間でスピンコートする事により50nmの正孔ブロック層を得た。

10 【0118】真空蒸着装置により真空度 $10^{-3}$ Paでアルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secの速度で共蒸着して陰極を形成した。

【0119】この時、9V、1mA/cm<sup>2</sup>で160cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光を得た。

【0120】[比較例1]分子量1,100,000のPVK6mgとIr(ppy),を0.5mgとを1mlの1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

20 【0121】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上(市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1を回転数1000rpm、1秒間スピンコートする事により50nmの発光層を形成した。

【0122】さらに、真空蒸着装置により真空度 $10^{-3}$ PaでPBDを蒸着速度1nm/secの速度で50nm蒸着し正孔ブロック層を形成し、最後にアルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secの速度で共蒸着して陰極を形成して図2に示す素子構造を作成した。

30 【0123】この時、9V、1mA/cm<sup>2</sup>で170cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光を得た。

【0124】[実施例1]と[比較例1]とを比較すると正孔ブロック層の形成を湿式のスピンコートで行っても、蒸着で形成する時より、若干性能が下がるだけである事が判る。

【0125】[実施例2][実施例1]の溶液2の溶媒を下記に示す[表2]の溶媒にした以外は[実施例1]と同様に図2に示す素子構造を作成したところ、[表2]のような発光効率の発光が得られた。

40 【0126】

[表2]

(10)

特開2002-319488

17

18

溶媒名	溶解度 パラメータ	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
		電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
1-クロロプロパン	8.30	9.0	160
テトラクロロメタン	8.60	9.0	160
エチルベンゼン	8.70	9.0	160
トルエン	8.90	素子作成できず	
トリクロロメタン	9.10		
ベンゼン	9.20		
トリクロロエチレン	9.30		
クロロベンゼン	9.60		
1,2-ジクロロエタン	9.70		
ブロモベンゼン	9.90		
o-ジクロロベンゼン	10.00		
α-ブロモナフタリン	10.60	9.2	160
ニトロエタン	11.10	9.5	150
アセトニトリル	11.80	9.3	150
ニトロメタン	12.70	9.5	140

【0127】[実施例3] 分子量1,100,000のPVKとして6mgを1mlの1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0128】OXD-1として2.5mgとIr(pppy),として0.17mgとバインダ高分子として分子量100,000のポリビニルピフェニル2.5mgをキシレン(溶解度パラメータ8.8(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>)1mlに溶解して、溶液2を作成した。

【0129】PBDとして2.5mgと[化21]で示すイリジウム錯体化合物として0.17mgとバインダ高分子としてポリスチレン(分子量10,000)2.5mgとをシクロヘキサン(溶解度パラメータ8.2(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>)の溶媒1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0130】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上(市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1を回転数1500rpm、1秒間スピンコートする事により50nmの正孔輸送層を形成した。この正孔輸送層の溶解範囲は8.9~10.0(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>であった。

【0131】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1000rpm、1秒間でスピンコートする事により20nmの発光層を得た。この発光層の溶解範囲は8.7~11.1(cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>であった。

【0132】さらに、発光層上に溶液3を回転数1000rpm、1秒間でスピンコートする事により50nmの正孔ブロック層を得た。

【0133】真空蒸着装置により真空度10<sup>-3</sup>Paでアルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secの速度で共蒸着して陰極を形成して図3に示す素子構造を作成した。

【0134】この時、9V、1mA/cm<sup>2</sup>で480cd/m<sup>2</sup>の緑色の発光を得た。

【0135】[実施例4][実施例3]の溶液3の溶媒を下表の溶媒にした以外は[実施例3]と同様に図3に示す素子構造を作成したところ下記[表3]に示す発光効率の発光が得られた。

【0136】

【表3】

溶媒名	溶解度 パラメータ	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
		電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
1-クロロプロパン	8.30	9.0	480
テトラクロロメタン	8.60	9.0	480
エチルベンゼン	8.70	素子作成できず	
トルエン	8.90		
トリクロロメタン	9.10		
ベンゼン	9.20		
トリクロロエチレン	9.30		
クロロベンゼン	9.60		
1,2-ジクロロエタン	9.70		
ブロモベンゼン	9.90		
o-ジクロロベンゼン	10.00		
α-ブロモナフタリン	10.60		
ニトロエタン	11.10		
アセトニトリル	11.80	9.3	460
ニトロメタン	12.70	9.5	450

【0137】[実施例5][実施例3]で発光層ドーパ剤をIr(pppy),に替え、下記[表4]のドーパ剤を使用した以外は[実施例3]と同様に図3に示す素子構造を作成したところ下記[表4]に示す発光効率の発光が得られた。

【0138】

【表4】

19

化合物	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能		発光ピーク波長 (nm)
	電圧(V)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )	
化16	9.1	450	545
化17	9.1	290	563
化18	9.2	550	525
化19	8.9	360	555
化20	8.9	50	608
化21	9.0	510	516
化23	9.1	450	545
化24	9.1	280	563
化25	8.9	540	525
化26	9.1	360	555
化27	9.0	40	608
化28	8.8	15	647

【0139】[実施例6] [実施例3]で正孔ブロック層と陰極との間に電子注入層として、フッ化リチウムを真空蒸着で真空度 $10^{-3}$  Pa、速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で $5 \text{ nm}$ 成膜し、陰極をアルミニウムに替えた以外は[実施例3]と同様に図3に示す素子構造を作成した。

【0140】この時、 $8.7 \text{ V}$ 、 $1 \text{ mA/cm}^2$ で $520 \text{ cd/m}^2$ の緑色の発光であった。

【0141】[実施例7] [実施例3]のITO陽極と正孔輸送層との間に正孔注入層として、銅パーフロシアニンを真空蒸着で、真空度 $10^{-3}$  Pa、速度 $0.1 \text{ nm/sec}$ で $5 \text{ nm}$ 成膜した以外は[実施例3]と同様に図3に示す素子構造を作成した。

【0142】この時、 $8.4 \text{ V}$ 、 $1 \text{ mA/cm}^2$ で $520 \text{ cd/m}^2$ の緑色の発光であった。

【0143】[実施例8] [化41]で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖のアルキル( $-\text{C}_n\text{H}_{2n+1}$ )とし分子量は $1,000,000$ とした時の溶解度パラメータでの溶解範囲を[実験1]にしたがい測定したときの溶解範囲の測定結果を下記[表5]に示す。

【0144】

[表5]

n	溶解範囲	
	上限	下限
2	7.05	7.05以下
3	7.64	7.05以下
4	8.13	7.45
5	8.60	7.64
6	8.90	7.85
7	9.20	8.13
8	9.30	8.20
9	9.70	8.30
10	10.00	8.60
11	10.00	8.60
12	10.60	8.60
13	10.60	8.60
14	11.10	8.70
15	11.10	8.70
16	11.80	8.70

【0145】Rに付くアルキル基の長さで溶解範囲が調整できる事が判る。

【0146】この時、溶解範囲が $8.4 (\text{cal/cm}^3)^{1/3}$ 未満又は $11.5 (\text{cal/cm}^3)^{1/3}$ 以上の範囲にすれば、下層に位置する発光層の材料の選択範囲が広がる。

(11)

特開2002-319488

20

【0147】そこでPVK (分子量 $1,100,000$ )として $6 \text{ mg}$ を $1 \text{ ml}$ の1,2ジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0148】OXD-1として $2.5 \text{ mg}$ とIr(ppp),として $0.17 \text{ mg}$ とバインダ高分子としてポリビニルピフェニル (分子量 $115,000$ )  $2.5 \text{ mg}$ をキシレン $1 \text{ ml}$ に溶解して、溶液2を作成した。

【0149】[化41]で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖のアルキル( $-\text{C}_n\text{H}_{2n+1}$ )としたくり返し単位を持つ分子量 $1,000,000$ の重合体 $5 \text{ mg}$ をシクロヘキサン $1 \text{ ml}$ に溶解して、溶液3を作成した。

【0150】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上(市販ITO、旭硝子社製: $20 \Omega/\square$ 以下)に溶液1を回転数 $1000 \text{ rpm}$ 、1秒間でスピコートする事により $50 \text{ nm}$ の正孔輸送層を得た。

【0151】正孔輸送層上に溶液2を回転数 $1000 \text{ rpm}$ 、1秒間でスピコートする事により $20 \text{ nm}$ の発光層を得た。この、発光層の溶解範囲は $8.6 \sim 11.1 (\text{cal/cm}^3)^{1/3}$ であった。

【0152】さらに、発光層上に溶液3を回転数 $1000 \text{ rpm}$ 、1秒間でスピコートする事により $50 \text{ nm}$ の電子輸送層を得た。

【0153】最後に、真空蒸着装置によりアルミニウムとリチウムを真空度 $10^{-3}$  Paで、リチウムが1%となるように蒸着速度 $1 \text{ nm/sec}$ の速度で共蒸着して陰極を形成して図4に示す素子構造を作成したところ、下記[表6]に示す発光効率の発光が得られた。

【0154】

[表6]

n	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧(V)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )
5	7.9	500
6	8.0	500
7	8.0	510
8	8.1	510
9以上	シクロヘキサンに不溶	

【0155】[実施例9] [実施例8]の溶液2のバインダ高分子をPVK (分子量 $50,000$ )に、溶媒をトリクロロエチレンに替え、溶液3の溶媒をエチルベンゼンに替えた以外は、[実施例8]と同様に図4に示す素子構造を作成した。

【0156】この時、発光層の溶解範囲は、 $8.9 \sim 10.6 (\text{cal/cm}^3)^{1/3}$ であり、下記[表7]に示す発光効率の発光が得られた。

【0157】

[表7]

50

(12)

特開2002-319488

21

n	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
6	7.3	430
7	7.4	430
8	7.4	430
9	7.5	430
10	7.5	420
11	7.7	420
12	7.8	420

【0158】溶液3の溶媒をエチルベンゼンに替え、発光層のバインダ高分子をエチルベンゼンに不溶なPVK（分子量50,000）に替えた事により、1 mA/cm<sup>2</sup>での輝度が低下した。

【0159】【実施例10】【化41】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖の-C<sub>10</sub>H<sub>21</sub>とした時の各分子量で溶解度パラメータでの溶解範囲を【実験1】にしたがい測定したときの溶解範囲の測定結果を下記【表8】に示す。

【0160】

【表8】

分子量	溶解範囲	
	上限	下限
10,000	11.10	7.64
60,000	10.60	7.85
100,000	10.60	8.20
500,000	10.60	8.30
1,000,000	10.00	8.60

溶媒名	溶解度パラメータ	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
		電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
n-ノナン	7.64	8.5	480
1-デセン	7.85	8.5	480
メチルシクロヘキサ	8.13	8.1	480
シクロヘキサ	8.20	8.2	490
1-クロロプロパン	8.30	8.1	510
テトラクロロメタン	8.60	素子作成不能	
エチルベンゼン	8.70		
m-キシレン	8.80		
トルエン	8.90		
トリクロロメタン	9.10		
ブロモベンゼン	9.90		
o-ジクロロベンゼン	10.00		
α-ブロモナフタリン	10.60		
ニトロエタン	11.10		
アセトニトリル	11.80	8.0	480

【0166】溶媒が変化しても、下層が不溶範囲の溶媒を使用すれば、1 mA/cm<sup>2</sup>での輝度ばらつきが10%以内になる。

【0167】【実施例12】【化14】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖のアルキル（-C<sub>10</sub>H<sub>21</sub>...）とした分子量100,000の重合体の溶解範囲を【実験1】にしたがい測定したところ、下記【表11】に示す測定結果が得られた。

【0168】

【表11】

n	溶解範囲	
	上限	下限
5	8.7	7.9
6	9.1	7.8
7	9.3	8.1
8	9.6	8.2
9	9.9	8.3
10	10.0	8.3
11	10.0	8.3
12	10.6	8.3
13	10.6	8.6
14	11.1	8.6
15	11.1	8.6

【0169】Rに付くアルキル基の長さで溶解範囲が調整できる事が判る。この時、溶解範囲を8.9 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/2</sup>未満に調整すると、下層の正孔輸送層の材料選択範囲が広がる。

22

【0161】分子量で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0162】これらの材料を使用して、【実施例8】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記【表9】に示す発光効率の発光が得られた。

【0163】

【表9】

分子量	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
10,000	8.2	490
60,000	8.2	500
100,000	8.3	510
500,000	シクロヘキサに溶解せず	
1,000,000		

【0164】【実施例11】【化41】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖の-C<sub>10</sub>H<sub>21</sub>（分子量10,000）として、溶媒による性能の差を調査した。素子作成方法は、【実施例8】において電子輸送層に用いた重合体と溶媒とを換えた以外は【実施例8】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記【表10】に示す発光効率の発光が得られた。

【0165】

【表10】

【0170】又、8.4 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>未満又は10 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>より大きい溶媒に不溶であるように調整すると上層成膜時の溶媒の選択範囲が広がる。

【0171】ここで、分子量1,100,000のPVK 6mgを1mlのジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0172】【化14】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖のアルキル(-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>,...)とした分子量100,000の重合体として5mgとIr(ppy),として0.17mgとをエチルベンゼン1mlに溶解して、溶液2を作成した。

【0173】PBD2, 5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0174】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上(市販ITO、旭硝子社製:20Ω/□以下)に溶液1を回転数1500rpm、1秒間スピコートする事により50nmの正孔輸送層を形成した。この、正孔輸送層の溶解範囲は8.9~10.0 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>であった。

【0175】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1000rpm、1秒間でスピコートする事により20nmの発光層を得た。

【0176】さらに、発光層上に溶液3を回転数1000rpm、1秒間でスピコートする事により50nmの電子輸送層を得た最後に、アルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secの速度で共蒸着して陰極を形成した。この時、下記【表12】に示す発光効率の発光が得られた。

【0177】

【表12】

n	1mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧(V)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )
5~8	素子作成出来ず	
9	7.8	480
10	7.8	480
11	7.8	490
12	7.8	490
13	8.0	500
14	8.2	500
15	8.4	500

【0178】N≤8では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0179】【実施例13】【実施例12】の溶液3の溶媒をαプロモナフタリンに替えた以外は、【実施例12】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記【表13】に示す発光効率の発光が得られた。

【0180】

【表13】

n	1mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧(V)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )
5	7.8	440
6	7.8	450
7	7.8	450
8	7.9	460
9	8.0	450
10	8.0	460
11	8.0	460
12~15	素子作成出来ず	

【0181】Nが12~15では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0182】【実施例14】【化14】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖の-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>とした時の各分子量で溶解度パラメータでの溶解範囲を【実験1】にしたがい測定したところ、下記【表4】に示す測定結果が得られた。

【0183】

【表14】

分子量	溶解範囲	
	上限	下限
10,000	10.6	7.85
60,000	10.0	7.85
100,000	9.8	8.20
500,000	9.3	8.60
1,000,000	9.3	8.60

【0184】分子量で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0185】ここで、上記の分子量を調整した重合体を使用して、【実施例12】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記【表15】に示す発光効率の発光が得られた。

【0186】

【表15】

分子量	1mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧(V)	輝度(cd/m <sup>2</sup> )
10,000	素子作成不能	
60,000	素子作成不能	
100,000	素子作成不能	
500,000	7.8	480
1,000,000	7.8	480

【0187】【実施例15】【化14】で示すポリフルオレン化合物のRを直鎖の-C<sub>4</sub>H<sub>9</sub>とした分子量100,000の重合体5mgとIr(ppy),として0.17mgとを下記【表16】の溶媒各1mlに溶解して、【実施例12】の溶液2に替えた以外は【実施例12】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記【表16】に示す発光効率の発光が得られた。

【0188】

【表16】



溶媒名	溶解度 パラメータ	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
		電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
1-クロロプロパン	8.30	7.8	450
テトラクロロメタン	8.60	7.8	450
エチルベンゼン	8.70	7.8	480
n-キシレン	8.80	7.8	480
トルエン	8.90	素子作成不能	

【0189】溶媒が変化しても、1 mA/cm<sup>2</sup>での輝度のばらつきは10%以内である。

【0190】[実施例16][化5]に示すポリカルバゾール化合物のRを直鎖のアルキル(-C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>)とし、  
10 した時の溶解範囲を[実験1]にしたがい測定したところ、下記[表17]に示す測定結果が得られた。

【0191】

【表17】

n	溶解範囲	
	上限	下限
0	9.2	8.9
1	9.3	8.9
2	9.7	8.9
3	9.9	8.9
4	10.0	8.9
5	10.6	8.8
6	10.6	8.8
7	10.6	8.7
8	11.1	8.7
9	11.1	8.6
10	11.1	8.6
11	11.8	8.6
12	11.8	8.3
13	11.8	8.3
14	11.8	8.3
15	12.7以上	8.2

【0192】Rに付くアルキル基の長さで溶解範囲が調整できる事が判る。

【0193】この時、溶解範囲を8.9 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>未満に調整すると、下層の正孔輸送層の材料選択範囲が広がる。

【0194】又、8.4 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>未満又は10 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>より大きい溶媒に不溶であるように調整すると上層成膜時の溶媒の選択範囲が広がる。

【0195】ここで、分子量1,100,000のPVK 6mgを1mlのジクロロエタンで溶解して、溶液1を作成した。

【0196】[化5]に示すポリカルバゾール化合物のR  
40 を直鎖のアルキル(-C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>)とした分子量10,000の重合体として5mgとIr(ppy)<sub>3</sub>として0.17mgとをキシレン1mlに溶解して、溶液2を作成した。

【0197】PBDとして2.5mgとバインダ高分子として分子量50,000のポリスチレン2.5mlとをシクロヘキサン1mlに溶解して、溶液3を作成した。

【0198】酸素プラズマ処理を行なったITO基板上  
(市販ITO、旭硝子社製：20Ω/□以下)に溶液1  
50

を回転数1500rpm、1秒間スピンコートする事により50nmの正孔輸送層を形成した。この正孔輸送層の溶解範囲は8.9~10.0 (cal/cm<sup>3</sup>)<sup>1/3</sup>であった。

【0199】さらに、正孔輸送層上に溶液2を回転数1000rpm、1秒間でスピンコートする事により20nmの発光層を得た。

【0200】さらに、発光層上に溶液3を回転数1000rpm、1秒間でスピンコートする事により50nmの電子輸送層を得た最後に、アルミニウムとリチウムを、リチウムが1%となるように蒸着速度1nm/secの速度で共蒸着して陰極を形成した。この時、下記[表18]に示す発光効率の発光が得られた。

20 【0201】

【表18】

n	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
5	8.0	460
6	8.0	460
7	8.1	460
8	8.2	460
9	8.2	470
10	8.2	470
11	8.2	470
12	8.3	470
13	8.3	460
14	8.4	460
15	素子作成出来ず	

【0202】N=15では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0203】[実施例17][実施例16]の溶液3の溶媒をニトロエタンに替えた以外は、[実施例16]と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、下記[表19]に示す発光効率の発光が得られた。

【0204】

【表19】

n	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
	電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
5	8.2	430
6	8.2	430
7	8.2	430
8~15	素子作成出来ず	

【0205】N≥8では、電子輸送層成膜時に発光層が溶解してしまう為、素子は作成できなかった。

【0206】[実施例18][化5]に示すポリカルバゾール化合物のRを直鎖の-C<sub>n</sub>H<sub>2n+1</sub>とした時の各分子量での溶解範囲を[実験1]にしたがい測定したところ、下記[表20]に示す測定結果が得られた。

(15)

特開2002-319488

27

28

【0207】

【表20】

分子量	溶解範囲	
	上限	下限
10,000	11.1	8.7
50,000	10.6	8.9
100,000	9.9	9.1
500,000	9.7	9.1
1,000,000	9.7	9.3

【0208】分子量で溶解範囲が調整できる事が判る。

【0209】ここで、上記の各分子量に調整した重合体 10  
を使用して、【実施例16】と同様に図4に示す素子構造  
を作成したところ、下記【表21】に示す発光効率の発光  
が得られた。

【0210】

【表21】

溶媒名	溶解度 パラメータ	1 mA/cm <sup>2</sup> での性能	
		電圧 (V)	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )
1-クロロプロパン	8.30	8.2	440
テトラクロロメタン	8.60	8.2	460
エチルベンゼン	8.70	8.2	460
n-キシレン	8.80	8.2	460
トルエン	8.90	素子作成不能	
o-ジクロロベンゼン	10.00		
α-ブロモナフタリン	10.60	8.2	440
ニトロエタン	11.10	8.4	440
アセトニトリル	11.80	8.4	430

【0214】溶媒が変化しても、正孔輸送層の溶解範囲  
外では、1 mA/cm<sup>2</sup>での輝度のばらつきが10%以  
内となる。

【0215】

【発明の効果】以上の説明から明らかなように、本発明  
により、有機エレクトロルミネッセンス素子を構成する 30  
発光層と該発光層に積層する有機層とを溶液にした状  
態、すなわち湿式法で、簡易に多層積層を形成し得る素  
子構造を有する有機エレクトロルミネッセンス素子が得  
られる。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機エレクトロルミネッセンス素子の素子構造

【0211】100,000～1,000,000の分  
子量では溶液2が作成できなかった。

【0212】【実施例19】【化5】に示すポリカルバ  
ゾール化合物のRを直鎖の-C<sub>1</sub>H<sub>1.1</sub>とした分子量1  
0,000の重合体として5mgとIr (ppy)<sub>3</sub>と  
して0.17mgとを下記【表22】に示す溶媒各1ml  
に溶解したものを溶液2として用いた以外は【実施例1  
6】と同様に図4に示す素子構造を作成したところ、【表  
22】に示す発光効率の発光が得られた。

【0213】

【表22】

【図2】本発明の素子構造の第1の実施形態

【図3】本発明の素子構造の第2の実施形態

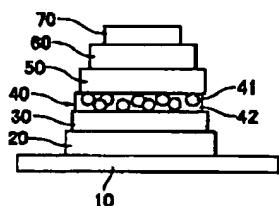
【図4】本発明の素子構造の第3の実施形態

【図5】(a)～(c) サンプルピースの溶解範囲の溶  
解度パラメータの測定手順

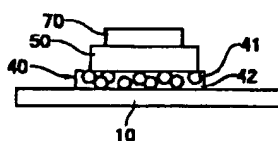
【符号の説明】

- 10 陽極層
- 40 発光層
- 41 ドープ剤
- 42 ホスト剤
- 50 正孔ブロック層 (有機層)
- 70 陰極層

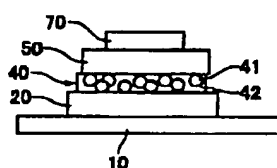
【図1】



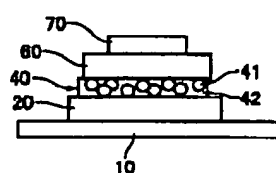
【図2】



【図3】



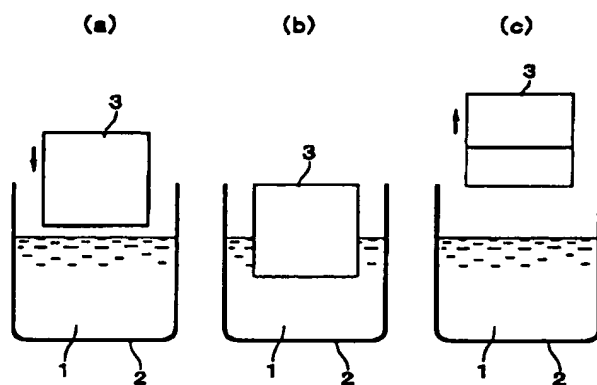
【図4】



( 16 )

特開2002-319488

【図5】



BEST AVAILABLE COPY